

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-053843

(43)Date of publication of application : 28.02.1995

(51)Int.Cl.

C08L 53/00

C08K 3/34

C08L 23/08

(21)Application number : 05-205264

(71)Applicant : MITSUBISHI CHEM CORP
TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 19.08.1993

(72)Inventor : NISHIO TAKESUMI
NOMURA TAKAO
SATO HIROKI
TSUTSUMI IKUO
SANO HIROSHIGE

(54) THERMOPLASTIC POLYMER COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a thermoplastic polymer composition having good moldability in injection molding, providing a molded article having good appearance, excellent flexural modulus, heatresistance, surface hardness and impact resistance and low gloss and suitable for injection molded articles required to have dull appearance such as interior trim of automobile, etc.

CONSTITUTION: This thermoplastic polymer composition is composed of (A) 55-75wt.% of a propylene-ethylene block copolymer having an MFR of 10-30g/10min, an MFR of the propylene homopolymer part of 15-50g/10min and an isotactic pentad fraction of 0.97, (B) 0-10wt.% of an ethylene-propylene copolymer rubber having a melting temperature of 30-60°C and an MFR of 0.2-2g/10min, (C) 5-15wt.% of an ethylene- α -olefin copolymer resin having a melting temperature of 60-100°C and an MFR of 0.2-2g/10min and (D) 15-25wt.% of tale having an average particle diameter of 5 μ m and a specific surface area of 3.5m²/g. The sum of the components B and C is 10-20wt.% and the thickness of the crystal lamella of the propylene homopolymer domain is 8nm.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.05.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3117850

[Date of registration] 06.10.2000

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-53843

(43) 公開日 平成7年(1995)2月28日

(51) Int. CL ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 53/00	LLY			
C 0 8 K 3/34				
C 0 8 L 23/08	LCN			

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願平5-205264

(22) 出願日 平成5年(1993)8月19日

(71) 出願人 000006057

三菱油化株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目5番2号

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 西 尾 武 純

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72) 発明者 野 村 孝 夫

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 弁理士 佐藤 一雄 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱可塑性重合体組成物。

(57) 【要約】

【目的】 射出成形時の加工性が良好で、外観も良く、曲げ弾性率、耐熱性、表面硬度、耐衝撃性が優れ、かつ光沢が低く、艶消し状の外観が要求される自動車用内装部品等の射出成形品に好適な熱可塑性重合体組成物を得る。

*

(B) 成分：融解温度：30～60℃、MFR：0.2～2g/10分のエチレン・プロピレン共重合体ゴム 0～10重量%。

(C) 成分：融解温度：60～100℃、MFR：0.2～2g/10分のエチレン・α-オレフィン共重合体樹脂 5～15重量%。及び、

(D) 成分：平均粒径：5μm以下、比表面積：3.5m²/g以上のタルク 15～25重量%

からなり、(B) + (C) 成分 = 10～20重量%、プロピレン単独重合体領域の結晶ラメラの厚みが8nm以

* 【構成】 (A) 成分：MFR：10～30g/10分、プロピレン単独重合体部のMFR：15～50g/10分、アイソタクチックベンタッド分率：0.97以上のプロピレン・エチレンブロック共重合体 55～75重量%、

上である熱可塑性重合体組成物。

【特許請求の範囲】

* * 【請求項1】

(A) 成分: MFRが10~30g/10分(230℃, 2.16kg荷重)で、プロピレン単独重合体部分のMFRが15~50g/10分、アイソタクチックペンタッド分率が0.97以上であるプロピレン・エチレンブロック共重合体 55~75重量%、

(B) 成分: 示差走査熱量計による測定で30~60℃に融解温度を持ち、MFRが0.2~2g/10分(230℃, 2.16kg荷重)であるエチレン・プロピレン共重合体ゴム 0~10重量%、

(C) 成分: 示差走査熱量計による測定で60~100℃に融解温度を持ち、MFRが0.2~2g/10分(230℃, 2.16kg荷重)であるエチレン・α-オレフィン共重合体樹脂 5~15重量%、及び、

(D) 成分: 平均粒径が5μm以下であり、比表面積が3.5m²/g以上であるタルク 15~25重量%、

からなり、上記(B)成分と(C)成分の和が10~20重量%であって、組成物中のプロピレン単独重合体領域における(100)若しくは(010)面の法線方向から電子顕微鏡観察した結晶ラメラの厚みの平均値が8nm以上であることを特徴とする熱可塑性重合体組成物。

【請求項2】組成物が、MFRが8g/10分以上で、23℃における曲げ弾性率が20,000kg/cm²以上、アイゾット衝撃値が15kg・cm/cm以上、引張り伸びが200%以上、熱変形温度が120℃以上、ロックウェル硬度が70以上である、請求項1に記載の熱可塑性重合体組成物。

【請求項3】組成物が、表面光沢50%以下のものである、請求項1に記載の熱可塑性重合体組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、プロピレン・エチレンブロック共重合体、エチレン・プロピレン共重合体ゴム、エチレン・α-オレフィン共重合体樹脂及びタルクにより構成され、射出成形時の加工性が良好で、外観も良く、曲げ弾性率、耐熱性、表面硬度、耐衝撃性が優れ、かつ光沢が低く、艶消し状の外観が要求される、例えば自動車用内装部品等の射出成形品に好適な、特定の熱可塑性重合体組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ポリプロピレンに、エチレン・プロピレン共重合体や各種エチレン系共重合体及びタルクを加えて、耐衝撃性や剛性を高めようという試みは従来より数多く行なわれており、例えば優れた耐衝撃性を有する特公昭63-42929号、特開昭64-150号、特開昭64-66263号、特開平1-204946号の各公報に記載の組成物が知られている。しかし、上記特公昭63-42929号公報に記載の組成物では、格別に高結晶性のポリプロピレンを用いていないために十分な曲げ弾性率や耐熱性が得られないだけでなく、エチレン・プロピレン共重合体やエチレン・ブテン共重合体も、必ずしも高粘度のものを用いていないために、艶消し状

の良好な外観の製品が得られるとは限らない。また、特開昭64-150号、特開昭64-66263号及び特開平1-204946号公報に記載の組成物では、タルクの配合量が少ないために、バンパーのような軟質の製品には適するが、内装材に使用するには曲げ弾性率が大幅に不足したものである。一方、特公平4-28749号公報に記載の組成物や特公平4-63100号公報に記載の組成物が知られているが、これらはいずれも格別に高結晶性のポリプロピレンを用いていない点で特公昭63-42929号公報に記載の組成物と同様な性能を示すものである。また、エチレン・α-オレフィン系共重合体と多量の無機充填剤を配合した特公平4-159345号公報に記載の組成物が知られているが、該組成物では衝撃強度が不足し、自動車用内装部品として使用に耐えることができない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】このような従来の熱可塑性重合体組成物の多くは、ポリプロピレンの結晶性が不足するために自動車用内装部品としての十分な曲げ弾性率と耐熱性が得られないし、高結晶性のポリプロピレンを用いている組成物でも、配合するエチレン・プロピレン共重合体ゴムやエチレン・α-オレフィン共重合体樹脂の結晶性と粘度、或いはタルクの配合量が適切でないために、艶消し状の外観を有し、フローマークが無く、剛性と耐衝撃性のバランスの良い、自動車用内装部品に好適な組成物を得ることができなかった。従って、本発明はこれらの問題点を総合的に解決されることを目的とするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】

【発明の概要】本発明者等は、成形性、外観及び各種機械強度のバランスに関する上記課題を解決する手法について種々検討した結果、高流動で極めて高い結晶性を有するプロピレン単独重合体部分を備えたプロピレン・エチレンブロック共重合体に、分子内に結晶性セグメントを含有するエラストマー状の共重合体及びタルクを配合する手法を見出し、この手法の下に種々検討した結果、

3 特定のプロピレン・エチレンブロック共重合体、エチレン・プロピレン共重合体ゴム、エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂及びタルクを特定の割合で配合することにより射出成形時の加工性が良好で外観も良く、高剛性で*

4 *表面硬度が優れた特定の熱可塑性重合体組成物が得られることを見出し発明を完成させた。

【0005】すなわち、本発明の熱可塑性重合体組成物は、

(A)成分: MFRが10~30g/10分(230℃、2.16kg荷重)で、プロピレン単重合体部分のMFRが15~50g/10分、アイソタクチックペンタッド分率が0.97以上であるプロピレン・エチレンブロック共重合体 55~75重量%、

(B)成分: 示差走査熱量計による測定で30~60℃に融解温度を持ち、MFRが0.2~2g/10分(230℃、2.16kg荷重)であるエチレン・プロピレン共重合体ゴム 0~10重量%、

(C)成分: 示差走査熱量計による測定で60~100℃に融解温度を持ち、MFRが0.2~2g/10分(230℃、2.16kg荷重)であるエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂 5~15重量%、及び、

(D)成分: 平均粒径が5 μ m以下であり、比表面積が3.5m²/g以上であるタルク 15~25重量%

からなり、上記(B)成分と(C)成分の和が10~20重量%であって、組成物中のプロピレン単重合体領域における(100)若しくは(010)面の法線方向から電子顕微鏡観察した結晶ラメラの厚みの平均値が8nm以上であることを特徴とするものである。

【0006】〔発明の具体的説明〕

(I) 熱可塑性重合体組成物

(1) 構成成分

(a) プロピレン・エチレンブロック共重合体((A)成分)

本発明の熱可塑性重合体組成物に用いるプロピレン・エチレンブロック共重合体は、MFRが10~30g/10分未満、好ましくは12~28g/10分、更に好ましくは15~25g/10分(230℃、2.16kg荷重)で、該プロピレン・エチレンブロック共重合体中のプロピレン単重合体部分のMFRが15~50g/10分未満、好ましくは17~45g/10分、更に好ましくは20~40g/10分、アイソタクチックペンタッド分率(P)が0.97以上、好ましくは0.975以上、更に好ましくは0.98~0.99のものである。

【0007】プロピレン・エチレンブロック共重合体のMFR並びにプロピレン・エチレンブロック共重合体中のプロピレン単重合体部分のMFRが上記範囲未満のものでは流動性が不足し、加工性が不十分であるだけでなく、製品表面にフローマークが現れて商品価値を著しく損ない、該MFRが上記範囲以上では耐衝撃性や引張り伸び特性が不十分であり、製品が脆性破壊し易くなるので共に不適当である。このプロピレン・エチレンブロック共重合体のMFRは、重合時に調整したもの、或いは重合後にジアルキル・パーオキサイド、ジアルキルパーオキサイド等の有機過酸化化物で調整したものであっても良い。また、プロピレン・エチレンブロック共重合体のエチレン含量は2~8重量%のもので、ブロック共重合

体部分のエチレン含量は30~50重量%のものが好ましい。エチレン含量が上記範囲未満では耐熱性が劣る傾向にあり、上記範囲超過のものでは曲げ剛性や表面硬度が不足する傾向にある。また、ブロック部のエチレン含量が上記範囲外のものは十分な衝撃強度が得られ難い。また、上記プロピレン単重合体部分のアイソタクチックペンタッド分率(P)が上記範囲未満では曲げ弾性率が不十分であるので不適当である。なお、ここでアイソタクチックペンタッド分率とは、¹³C-NMRを用いて測定されるポリプロピレン分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック分率である。

【0008】上記プロピレン・エチレンブロック共重合体の製造には高立体規則性触媒が用いられる。上記触媒の代表的な製造法には、四塩化チタンを有機アルミニウム化合物で還元し、更に各種の電子供与体及び電子受容体で処理して得られた三塩化チタン組成物と、有機アルミニウム化合物及び芳香族カルボン酸エステルとを組み合わせる方法(特開昭56-100806号公報、特開昭56-120712号公報、特開昭58-104907号公報)、及びハロゲン化マグネシウムに四塩化チタンと各種の電子供与体を接触させる担持型触媒の方法(特開昭57-63310号公報、特開昭63-43915号公報、特開昭63-83116号公報)等、公知の方法が用いられる。

【0009】(b) エチレン・プロピレン共重合体ゴム((B)成分)

本発明の熱可塑性重合体組成物に用いられるエチレン・プロピレン共重合体ゴムとエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂は、MFR(230℃、2.16kg荷重)が0.2~2g/10分、好ましくは0.3~1.5g/10分、更に好ましくは0.4~1.2g/10分のものである。MFRが上記範囲未満ではプロピレン・エチレンブロック共重合体への分散が困難であり、組成物の衝撃強度が低下し、上記範囲超過では製品の光沢

が高くなり、艶消し状の外観が必要な製品には不適当である。また、エチレン・プロピレン共重合体ゴムは、分子内に適当量の結晶性セグメントを有することが重要であり、示差走査熱量計による測定で30~60℃、好ましくは35~55℃、更に好ましくは40~50℃に融解温度(融点)を持つものである。融解温度(融点)が上記範囲未満では表面硬度が不足し、上記範囲超過では耐衝撃性が不足するので不適当である。また、プロピレン含量は12~30重量%、更に好ましくは15~25重量%のものが、耐衝撃性及び表面硬度の点で好適に用いられる。このエチレン・プロピレン共重合体ゴムは、第三成分としてエチリデンノルボルネン、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン等を用いたEPDMであっても良く、また、部分的にEPDMを併用したものであっても良い。

【0010】(c) エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂(C成分)

本発明の熱可塑性重合体組成物に用いられるエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂は、上記共重合体ゴム(B)成分との相溶性の観点で結晶性が高すぎないことが重要であるので、示差走査熱量計による測定で60~100℃、好ましくは65~90℃、更に好ましくは70~80℃に融解温度(融点)を持つものが使用される。融解温度が上記範囲未満では表面硬度が不十分であり、上記範囲超過では耐衝撃性が不足するので不適当である。また、密度は0.90g/cm³未満、更に好ましくは0.87~0.89g/cm³のものが耐衝撃性及び表面硬度の点で好適に用いられる。上記エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂は、チーグラ型触媒、フィリップス型触媒等のイオン重合触媒の存在下、気相流動床法、溶液法、スラリー法等の製造プロセスを適用して、エチレンと α -オレフィンを共重合することにより得られるものであり、 α -オレフィンの含有量にかかわらず融解温度が上記範囲内にあるものであれば良い。この α -オレフィン含有量は15~25重量%、更に好ましくは17~23重量%のものが、耐衝撃性及び表面硬度の点で好適に用いられる。エチレンと共重合する α -オレフィンは炭素数4~8の1-オレフィンであり、例えば、ブテン-1、3-メチルブテン-1、ペンテン-1、4-メチルペンテン-1、ヘキセン-1、ヘプテン-1、オクテン-1等である。これらエチレン・ α -オレフィン共重合体の中では、エチレン・ブテン-1共重合体が衝撃強度や引張り伸び特性と表面硬度とのバランスに優れている点で特に好ましい。この場合の α -オレフィンは1種類である必要はなく、2種類以上用いた多元素共重合体であっても良い。

【0011】(d) 重合体成分の配合割合

このような(A)~(C)成分の各重合体成分は、重合体組成物全体を100重量%としたとき、プロピレン・エチレンブロック共重合体(A成分)が55~75

重量%、好ましくは60~70重量%、エチレン・プロピレン共重合体ゴム(B成分)が0~10重量%、好ましくは2~8重量%、エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂(C成分)が5~15重量%、好ましくは7~13重量%であり、エチレン・プロピレン共重合体ゴム(B成分)とエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂(C成分)の和(B成分+C成分)が10~20重量%、好ましくは12~18重量%であることを満足するように配合される。本発明において、エチレン・プロピレン共重合体ゴムは物性バランスを向上させるのに役立つが、その量が上記範囲超過では表面硬度が不足するので不適当である。また、エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂が上記範囲未満では引張り伸び特性が低下して、製品が脆性破壊し易くなり、上記範囲超過では表面硬度が劣るので共に不適当である。また、エチレン・プロピレン共重合体ゴムとエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂の和が上記範囲未満では衝撃強度や引張り伸び特性が不足し、上記範囲超過では曲げ弾性率や表面硬度が不足するのでこれも不適当である。なお、本発明に用いられるプロピレン・エチレンブロック共重合体、エチレン・プロピレン共重合体ゴム及びエチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂は、各成分について2種以上の併用混合物であってもその平均値が上記範囲に入るものであれば何等差し支えない。

【0012】(e) タルク(D成分)

本発明の熱可塑性重合体組成物において、上記重合体成分に配合されるタルクとしては、乾式粉碎後乾式分級して製造され、平均粒径が5 μ m以下、好ましくは0.5~3 μ mで、かつ比表面積が3.5m²/g以上、好ましくは3.5~6m²/gのものであり、それらが上記範囲外のものでは耐衝撃性が劣るので不適当である。この平均粒径は、液相沈降式光透過法(例えば、島津製作所製CP型等)を用いて測定した粒度累積分布曲線から読み取った累積量50重量%の時の粒径値である。また、比表面積は空気透過法(例えば、島津製作所製SS-100型恒圧通気式比表面積測定装置等)による測定値である。タルクは未処理のまま使用しても良いが、重合体との接着性或いは分散性を向上させる目的で各種の有機チタネート系カップリング剤、シラン系カップリング剤、脂肪酸、脂肪酸金属塩、脂肪酸エステル等で処理したものを使用しても良い。また、タルクの配合量は、重合体組成物全体を100重量%としたとき、15~25重量%であり、好ましくは17~23重量%である。タルクの配合量が上記範囲未満では曲げ弾性率が不足し、上記範囲超過では耐衝撃性が不足するので不適当である。

【0013】(f) 付加的成分(任意成分)

本発明の熱可塑性重合体組成物には、上記必須成分の他に本発明の効果を著しく損なわない範囲で他の付加的成分を添加することができる。他の付加的成分としては、

熱可塑性重合体組成物に通常配合される添加剤、例えば加工性安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、金属石鹸類を始めとする各種石鹸類、帯電防止剤、滑剤、核剤、顔料及び顔料分散剤等の他、タルクよりも高い曲げ弾性率を与えることが知られている、繊維状チタン酸カリウム、繊維状マグネシウムオキシサルフェート、繊維状硫酸アルミニウム、炭酸カルシウム等のウイスキー類及び炭素繊維やガラス繊維等も必要に応じて添加することができる。なお、本発明の熱可塑性重合体組成物は本質的には極性基を有する重合体を含むしない組成物であるが、5重量%未満、好ましくは3重量%未満であれば、無水マレイン酸、メタクリル酸、トリメトキシビニルシラン等の単量体を共重合したプロピレン系共重合体や、酢酸ビニル等を共重合したエチレン系共重合体のような、極性基を有する重合体を含んでいる場合でも本発明の効果を損なうことはない。しかし、極性基を有する重合体を5重量%以上含有すると衝撃強度を損ない易いだけでなく、耐候性や耐熱老化性を低下させる傾向があるので、5重量%以上含有させることは好ましくない。

【0014】(2) 熱可塑性重合体組成物の製造

本発明の熱可塑性重合体組成物は、上記構成成分を通常の押出機やバンバリーミキサー、ロール、ブラベンダー、ニーダー等を用いて常法で混練して製造されるが、押出機、特に二軸押出機を用いて製造することが好ましい。また、本発明の熱可塑性重合体組成物の成形加工法は特に限定されるものではないが、奏される発明の効果から見て射出成形法を採用することが最も適している。

【0015】[II] 熱可塑性重合体組成物の物性

(1) 構造

(a) 結晶ラメラの厚み

本発明の熱可塑性重合体組成物は、通常行なわれる範囲の条件で成形された場合、組成物中のプロピレン単独重合体領域における(100)若しくは(010)面の法線方向から電子顕微鏡観察した結晶ラメラの厚みの平均値が8nm以上、好ましくは9nm以上となるものである。このラメラ厚みはプロピレン単独重合体部分の結晶性だけでは一義的に決まらず、分子量や分子量分布の影響を受ける。また、(B)及び(C)成分の組成や配合割合によっても変化するものである。この厚みが上記範囲未満では高温において結晶構造の緩みが顕著となり、耐熱性が不足するので不適当である。

【0016】(2) 性能

上記製造法により得られた本発明の熱可塑性重合体組成物は、射出成形時の加工性が良好で、フローマーク等の外観不良も無く、曲げ弾性率、耐衝撃性、引張り伸び特性、表面硬度、耐熱性の優れたもので、光沢が低く、例えば自動車内装部品等の、艶消し状の外観が要求される射出成形品に好適である。本発明の熱可塑性重合体組成物の好ましい物性値としては、

(a) MFR: 8g/10分以上、更に好ましくは10~30g/10分、

(b) 曲げ弾性率: 20,000~30,000kg/cm²、更に好ましくは22,000~28,000kg/cm²、

(c) ロックウェル硬度: 70以上、更に好ましくは80~100、

(d) 23℃におけるアイゾット衝撃値: 15kg·cm/cm以上、更に好ましくは20~50kg·cm/cm、

(e) 引張り伸び: 200%以上、更に好ましくは300~800%、

(f) 熱変形温度: 120℃以上、更に好ましくは130~150℃、

(g) 鏡面の全型を用いて成形された成形品の光沢: 50%以下、更に好ましくは10~40%の艶消しの成形体を得ることができる。

なお、この時を用いた全型の鏡面は、金型研磨用サンドペーパー#800で研磨することにより得られたものである。

【0017】[III] 本発明の熱可塑性重合体組成物の用途

本発明の熱可塑性重合体組成物は上記のような優れた特性を有することから、特に、ダッシュボード、内装トリム類のような、フローマークが無く、艶消し状の外観と耐傷性が重要な射出成形し得る大型の自動車内装用部材へ応用する場合に、本発明の効果を大きく発揮することができる。

【0018】

【実施例】以下に実験例を示して本発明を更に具体的に説明する。本発明において用いる測定法は次に示すとおりである。

[I] 測定法

(1) MFR: ASTM-D1238に準拠し、2.16kg荷重を用いて230℃で測定した。

(2) アイソタクチックペンタッド分率(P): ¹³C-NMRを用いてMacromolecule 8687(1975)中に記載されている方法に基づいて測定した。

(3) 結晶ラメラ厚み: 組成物の射出成形品から厚み方向に1mm間隔で小ブロックを切り出し(例えば4mmの厚みの成形品であれば、一方の表面から1mm2mm3mm内部の3箇所)、RuO₄試薬を用いて非晶部を電子線的に黒く染色し(詳細な処理方法は、Polymer 27, 1497(1986))、射出方向に平行方向並びにそれと直交する2方向との3方向から超薄切片を作成した後、透過型電子顕微鏡(例えば、日本電子製JEM-100CX)で結晶及び非晶の形態を観察する。得られた写真から(100)、(010)面の法線方向から観察される結晶ラメラ厚みを、一つの観察方向

について少なくとも100点以上計測し、各3方向及び厚み方向も含めて統計処理し、数平均を算出した値を結晶ラメラ厚みとした。また、プロピレン・エチレンブロック共重合体自身についても結晶ラメラ厚みを測定した。

(4) 融解温度(融点): 示差走査熱量計(例えば、デュボン社製910型DSC)に10mgの試料を装填し、+180℃まで加温した後1分間に10℃の一定速度で-100℃まで冷却する。その後1分間に20℃の一定速度で昇温し、得られるサーモグラムのピーク位置を融解温度(融点)とする。

(5) 曲げ弾性率: ASTM-D790に準拠し、23℃において、曲げ速度2mm/分で測定した。

(6) 耐衝撃性: ASTM-D785に準拠し、-30℃でのアイゾット値で評価した。

(7) 表面硬度: ASTM-D785に準拠し、23℃のロックウェル硬度をR-スケールで評価した。

(8) 引張り伸び特性: ASTM-D638に準拠し、23℃において引張速度10mm/分で測定した。 *

表 1

エチレン・プロピレンブロック共重合体					
種 類	プロピレン単独重合体部			ブロック共重合体	
	MFR (dg/min)	アイソタクチック ペンタッド分率	ラメラ厚み (nm)	MFR (dg/min)	エチレン含量 (wt%)
PP-1	39	0.982	9.8	22	4.7
PP-2	44	0.985	10.0	28	3.2
PP-3	20	0.979	9.0	17	6.0
PP-4	38	0.975	9.4	19	3.9
PP-5	77	0.988	10.2	42	3.8
PP-6	13	0.978	9.2	8	5.1
PP-7	33	0.964	8.3	21	5.5
PP-8	37	0.977	7.4	23	7.1

[0021]

[表2]

* (9) 熱変形温度: ASTM-D648に準拠し、4.6kg荷重を用いて測定した。

(10) 光沢: ASTM-D523に準拠し、入射角60度の条件で測定した。

[0019] [II] 実験例

実施例1~12及び比較例1~14

表1~4に示す材料を表5及び表6に示す組成で配合し、更に2, 6-ジ-tert-ブチル-p-フェノール0.1重量部、テトラキス[メチレン-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン0.1重量部及びカーボンブラック0.5重量部を配合して、川田製作所製スーパーミキサーで5分間混合した後、神戸製鋼所製FCM二軸混練機にて210℃にて混練・造粒して熱可塑性重合体組成物を得た。その後、型締力100トンの射出成形機にて成形温度220℃で各種試験片を作成し、前述の測定法に従って性能を評価した。評価結果を表7及び表8に示す。

[0020]

[表1]

表 2

エチレン・プロピレン共重合体ゴム			
種 類	MFR (dg/min)	融解温度 (°C)	プロピレン含量 (wt%)
EPR-1	0.8	43	22
EPR-2	1.3	38	23
EPR-3	0.3	50	17
EPR-4	2.7	45	20
EPR-5	0.1	44	22
EPR-6	0.6	71	10
EPR-7	0.8	20	31

[0022]

20 [表3]

表 3

エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂				
種 類	MFR (dg/min)	融解温度 (°C)	密 度 (g/cm ³)	コモノマー種
PEX-1	0.7	80	0.882	1-ブテン
PEX-2	1.4	88	0.889	1-ブテン
PEX-3	0.3	67	0.876	1-ヘキセン
PEX-4	2.4	66	0.877	1-ヘキセン
PEX-5	0.1	79	0.885	1-ブテン
PEX-6	0.7	106	0.909	1-ブテン
PEX-7	0.6	51	0.865	1-ブテン

[0023]

40

表

4

[表4]

タ ル ク		
種 類	平均粒径 (μ m)	比表面積 (m ² /g)
タルク-1	2.8	4.0
タルク-2	6.5	2.8

50

[0024]

* * [表5]

表 5

	P P		E P R		P E X		タ ル ク	
	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%
実施例-1	PP-1	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-2	PP-1	65	EPR-1	10	PEX-1	5	タルク-1	20
実施例-3	PP-1	65	EPR-1	0	PEX-1	15	タルク-1	20
実施例-4	PP-1	75	EPR-1	5	PEX-1	5	タルク-1	20
実施例-5	PP-1	55	EPR-1	10	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-6	PP-2	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-7	PP-3	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-8	PP-4	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-9	PP-1	65	EPR-2	5	PEX-2	10	タルク-1	20
実施例-10	PP-1	65	EPR-3	5	PEX-3	10	タルク-1	20
実施例-11	PP-1	60	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	25
実施例-12	PP-1	70	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	15

[0025]

※ ※ [表6]

表 6

	P P		E P R		P E X		タ ル ク	
	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%
比較例-1	PP-1	60	EPR-1	15	PEX-1	5	タルク-1	20
比較例-2	PP-1	60	EPR-1	0	PEX-1	20	タルク-1	20
比較例-3	PP-1	70	EPR-1	10	PEX-1	0	タルク-1	20
比較例-4	PP-1	55	EPR-1	10	PEX-1	15	タルク-1	20
比較例-5	PP-1	75	EPR-1	0	PEX-1	5	タルク-1	20
比較例-6	PP-5	75	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	10
比較例-7	PP-6	55	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	30
比較例-8	PP-7	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
比較例-9	PP-8	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
比較例-10	PP-1	65	EPR-4	5	PEX-4	10	タルク-1	20
比較例-11	PP-1	65	EPR-5	5	PEX-5	10	タルク-1	20
比較例-12	PP-1	65	EPR-6	5	PEX-6	10	タルク-1	20
比較例-13	PP-1	65	EPR-7	5	PEX-7	10	タルク-1	20
比較例-14	PP-1	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-2	20

[0026]

50 [表7]

表 7

	MFR (dg/min)	曲げ弾性率 (kg/cm ²)	I ZOD (kg·cm/cm)	引張り伸び (%)	熱変形温度 (°C)	表面硬度 (97.7H)	光沢 (%)	ラメラ厚み (nm)
実施例-1	14	25,200	20	>300	131	80	32	8.2
実施例-2	13	24,700	24	230	130	74	30	8.8
実施例-3	14	25,500	17	>300	132	86	29	9.5
実施例-4	20	28,500	15	210	136	87	35	9.7
実施例-5	11	22,000	33	>300	125	75	44	8.6
実施例-6	17	26,300	16	270	130	82	28	9.5
実施例-7	12	24,100	28	>300	128	78	33	8.4
実施例-8	13	23,000	22	>300	125	75	30	8.9
実施例-9	17	24,400	26	>300	130	77	46	8.8
実施例-10	12	25,000	16	>300	132	80	21	9.5
実施例-11	10	28,900	15	>300	134	79	20	9.2
実施例-12	19	22,200	19	>300	126	81	39	9.3

[0027]

[表8]

17

18

表 8

	MFR (g/min)	曲げ弾性率 (kg/cm^2)	120D ($\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$)	引張り伸び (%)	熱変形温度 ($^{\circ}\text{C}$)	表面硬度 (Vickers)	光沢 (%)	ラメラ厚み (nm)
比較例-1	11	22,700	32	280	124	58	40	8.4
比較例-2	10	22,200	24	>300	125	66	42	8.9
比較例-3	16	28,000	17	110	134	80	28	9.0
比較例-4	18	18,300	48	>300	118	69	45	7.8
比較例-5	26	35,500	8	50	139	91	29	9.8
比較例-6	28	18,500	11	170	127	83	30	9.0
比較例-7	6	32,100	12	>300	135	80	25	9.3
比較例-8	14	17,700	25	>300	123	76	30	8.1
比較例-9	14	21,300	23	>300	116	73	32	6.9
比較例-10	20	24,800	24	>300	129	78	61	8.8
比較例-11	10	25,600	12	250	133	81	16	9.3
比較例-12	13	26,000	10	240	131	88	30	8.6
比較例-13	14	24,900	26	>300	130	62	28	8.9
比較例-14	15	23,500	11	270	126	80	27	9.0

【0028】

【発明の効果】高流動で極めて高い結晶性を有するプロピレン単独重合体部分を備えたプロピレン・エチレンブロック共重合体に、特定のエチレン・プロピレン共重合体ゴム、エチレン・ α -オレフィン共重合体樹脂及びタ

*の熱可塑性重合体組成物は、射出成形時の加工性が良好で、外観も良く、曲げ弾性率、耐熱性、表面硬度、耐衝撃性が優れ、かつ光沢が低く、艶消し状の外観を備えていることから、自動車用内装部品、特にダッシュボード、内装トリム類等の大型の自動車内装部材の射出成形品に好適な熱可塑性重合体組成物である。

【手続補正書】

【提出日】平成5年11月8日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】

【表5】

表

5

	P P		E P R		P E X		タ ル ク	
	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%	種 類	wt%
実施例-1	PP-1	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-2	PP-1	65	EPR-1	10	PEX-1	5	タルク-1	20
実施例-3	PP-1	65	EPR-1	0	PEX-1	15	タルク-1	20
実施例-4	PP-1	70	EPR-1	5	PEX-1	5	タルク-1	20
実施例-5	PP-1	60	EPR-1	10	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-6	PP-2	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-7	PP-3	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-8	PP-4	65	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	20
実施例-9	PP-1	65	EPR-2	5	PEX-2	10	タルク-1	20
実施例-10	PP-1	65	EPR-3	5	PEX-3	10	タルク-1	20
実施例-11	PP-1	60	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	25
実施例-12	PP-1	70	EPR-1	5	PEX-1	10	タルク-1	15

フロンページの続き

(72)発明者 佐 藤 寛 樹

三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株
式会社四日市総合研究所内

(72)発明者 堤 育 雄

三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株
式会社四日市総合研究所内

(72)発明者 佐 野 博 成

三重県四日市市東邦町1番地 三菱油化株
式会社四日市総合研究所内